

## 論文内容の要旨

博士論文題目

ダイマーモット絶縁体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>X における光励起状態

氏名

辰巳 季央

モット絶縁体とは、電子同士が強いクーロン相互作用エネルギーを避けあい、各サイトに電子が局在化することにより絶縁体となった状態であり、バンドモデルで説明できる通常の絶縁体とは本質的に異なった特異な性質を示す。現在、様々なモット絶縁体が見出されているが、ダイマーモット絶縁体である  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>X は重要な位置を占める。この物質は、元々はホールに関して 1/4 充填電子状態となっているが、二つの BEDT-TTF 分子がダイマーを形成し、その結果ダイマーの反結合軌道によるバンドが 1/2 充填となりモット絶縁体の実現される。最近、 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>X において、ダイマーモット絶縁体が光励起によって金属に転移する光誘起相転移が観測され、新しい視点からモット絶縁体の研究を進めることができると期待されている。しかし、金属化の起源は未解明であり、本論文において、光誘起相転移の核となる光励起状態を理論的に明らかにし、光誘起相転移の起源を解明することを試みた。

解析には2次元非等方三角格子における 1/4 充填拡張ハバードモデルを用い、16サイトの系に周期的境界条件を適用した。十分に長いパルス幅の光に対する時間依存シュレディンガー方程式を数値的に厳密に解くことにより、まず光吸収スペクトルを計算した。そして主要な吸収ピークに対応するエネルギー固有状態に対するボンドオーダー、電荷相関関数、スピン相関関数、ダイマーが一重占有される確率  $W_s$ 、誘導吸収スペクトルなどを解析し、光励起状態の物理的性質を詳細に調べた。計算された光吸収スペクトルにおいて、低エネルギー側にはモットギャップに対応する吸収のない領域が存在し、実験結果を再現している。ギャップ端に近い低エネルギー領域における励起状態については、 $W_s$  の値からホロン・ダブロンが1対存在すること、またダイマー内ボンドオーダー  $p_{b1}$  の値よりダイマー内励起が生じていないことが分かった。従って、この低エネルギー領域においては、光励起はダイマー間励起を引き起こしダブロンホロン対が生成されていることが明らかになった。他方、高エネルギー側の主要な吸収ピークに寄与する励起状態は、 $W_s$  や  $p_{b1}$  の値や、基底状態と同様の反強磁性秩序を有することを示すスピン相関関数の値から、ダイマー内励起状態であることが明らかにされた。また、高エネルギー領域のその他の弱い吸収ピークに寄与する状態では、 $W_s$  やボンドオーダー、電荷相関関数、スピン相関関数の解析からダイマー内励起とダイマー間励起が混成していることが示された。

これらの結論を基に、 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>X における光誘起相転移の実験で見出されたダイナミックスの励起光子エネルギー依存性の特徴を本研究によって説明できることが示された。

### (論文審査結果の要旨)

モット絶縁体とは、電子同士が強いクーロン相互作用エネルギーを避けあい、各サイトに電子が局在することにより絶縁体となった状態である。これは、通常の固体のエネルギーバンド理論では説明のできない、電子間多体相互作用に起因する特異な絶縁体で、その多様な物性、およびモット絶縁体と金属の相転移(モット転移)は、物性物理学における未解決の重要課題の一つである。現在、様々なモット絶縁体が見出されているが、ダイマーモット絶縁体である $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>X は重要な位置を占める。この物質は、元々はホールに関して 1/4 充填電子状態となっているが、二つの BEDT-TTF 分子がダイマーを形成し、その結果ダイマーの反結合軌道によるバンドが 1/2 充填となりモット絶縁体となっている。最近、 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>X において、ダイマーモット絶縁体が光励起によって金属に転移する光誘起相転移が観測され、新しい視点からモット絶縁体の研究を進めることができる舞台となっている。しかし、光誘起金属転移の起源は未解明であり、本論文は光誘起相転移の核となる光励起状態を理論的に明らかにし、光誘起相転移の起源を解明することを試みたものである。

解析には 2次元非等方三角格子における 1/4 充填拡張ハバードモデルを用い、16 サイトの系に周期的境界条件を適用した。十分に長いパルス幅の光に対する時間依存シュレディンガー方程式を数値的に厳密に解くことにより、まず光吸収スペクトルを計算した。そして主要な吸収ピークに対応するエネルギー固有状態に対するボンドオーダー、電荷相関関数、スピン相関関数、ダイマーが一重占有される確率  $W_s$ 、誘導吸収スペクトルなどを解析し、光励起状態の物理的性質を詳細に調べた。計算された光吸収スペクトルにおいて、低エネルギー側にはモットギャップに対応する吸収の無い領域が存在し、実験結果を再現している。ギャップ端に近い低エネルギー領域における励起状態については、 $W_s$  の値からホロン・ダブロンが 1 対存在すること、またダイマー内ボンドオーダー  $p_{b1}$  の値よりダイマー内励起が生じていないことが分かった。従って、このエネルギー領域においては、光励起はダイマー間励起を引き起こしホロン・ダブロン対が生成していることが明らかになった。他方、高エネルギー側の主要な吸収ピークに寄与する励起状態は、 $W_s$  と  $p_{b1}$  の値や、基底状態と同様な反強磁性秩序を示すスピン相関関数の値から、ダイマー内励起状態であることが明らかにされた。また、高エネルギー領域でのその他の弱い吸収ピークに寄与する状態では、 $W_s$  やボンドオーダー、電荷相関関数、スピン相関関数の解析からダイマー内励起とダイマー間励起が混成していることが示された。

本論文で得られた結果は、多様な物性を示すことで注目されているダイマーモット絶縁体の光誘起相転移現象の解明に大きな寄与をするものであり、学術的に大きな意義を有する。よって、審査員一同、本論文が博士(工学)の学位論文として価値があるものと認めた。